

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2003年9月25日 (25.09.2003)

PCT

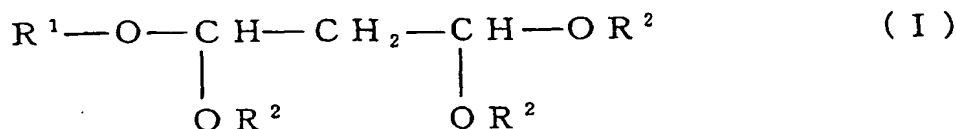
(10) 国際公開番号  
WO 03/078368 A1

- (51) 国際特許分類: C07C 43/303 (72) 発明者; および  
(21) 国際出願番号: PCT/JP03/01559 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 三田 真哉 (MITA, Shinya) [JP/JP]; 〒930-0103 富山県 富山市 北代 2 3 5-4 2 Toyama (JP). 室谷 昌宏 (MUROTANI, Masahiro) [JP/JP]; 〒930-0901 富山県 富山市 手屋 8 2-3 Toyama (JP). 小畑 裕昭 (OBATA, Hiroaki) [JP/JP]; 〒937-0053 富山県 魚津市 村木町 1 0 区 3-6 Toyama (JP).  
(22) 国際出願日: 2003年2月14日 (14.02.2003)  
(25) 国際出願の言語: 日本語  
(26) 国際公開の言語: 日本語  
(30) 優先権データ: 特願2002-77412 2002年3月20日 (20.03.2002) JP  
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本カーバイド工業株式会社 (NIPPON CARBIDE KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒108-8466 東京都 港区 港南 2 丁目 1 1 番 1 9 号 Tokyo (JP).  
(74) 代理人: 石田 敬, 外 (ISHIDA, Takashi et al.); 〒105-8423 東京都 港区 虎ノ門 三丁目 5 番 1 号 虎ノ門 3 7 森ビル 青和特許法律事務所 Tokyo (JP).  
(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ,

[続葉有]

(54) Title: ASYMMETRIC TETRAALKOXYPROPANE DERIVATIVE

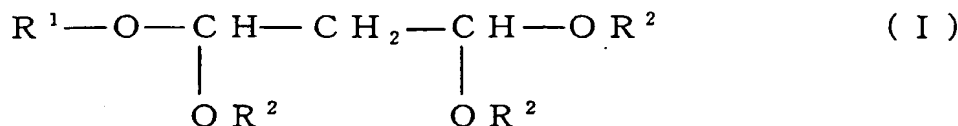
(54) 発明の名称: 非対称テトラアルコキシプロパン誘導体



(57) Abstract: An asymmetric 1,3,3-trialkoxo-1-propoxypropane represented by the formula (I): (I) wherein R<sup>1</sup> represents C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>, and R<sup>2</sup> represents CH<sub>3</sub> or C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>. It is a compound useful as, e.g., a material for pyrazole, pyrimidine, and the like, which are intermediates for medicines and agricultural chemicals.

(57) 要約:

式 (I) :

(式中、R<sup>1</sup>はC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>を示し、R<sup>2</sup>はCH<sub>3</sub>、C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>を示す)

で表される医薬農薬中間体であるピラゾールやピリミジン等の原料などとして有用な化合物である非対称1, 3, 3-トリアルコキシ-1-プロポキシプロパン。

WO 03/078368 A1



OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ,  
TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA,  
ZM, ZW.

特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,  
MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ,  
SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM,  
AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許  
(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,  
GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR), OAPI

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各 *PCT* ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイダンスノート」を参照。

## 明 細 書

## 発明の名称

非対称テトラアルコキシプロパン誘導体

## 技術分野

本発明は、新規な非対称テトラアルコキシプロパン誘導体に関し、更に詳しくは、例えば医薬農薬中間体であるピラゾールやピリミジン等の原料などとして用いられている、高選択性及び高反応性の骨格形成剤として有用な新規なテトラアルコキシプロパン誘導体である、非対称 1, 3, 3-トリアルコキシ-1-プロポキシプロパンに関する。

## 背景技術

対称 1, 1, 3, 3-テトラアルコキシプロパンは公知であり、例えば以下の特許文献 1 には、1, 1, 3, 3-テトラメトキシプロパン又は 1, 1, 3, 3-テトラアルコキシプロパンの物性値が記載されている。また、非対称 1, 1, 3, 3-テトラアルコキシプロパンに関しても、例えば以下の非特許文献 1 に、1, 3, 3-トリエトキシ-1-(n-ブトキシ)プロパン又は 1, 3, 3-トリエトキシ-1-(iso-ブトキシ)プロパンの物性値が記載されている。

しかしながら、本発明の非対称テトラアルコキシプロパン誘導体である、1) 1,3,3-トリメトキシ-1-(n-プロポキシ)プロパン、2) 1,3,3-トリメトキシ-1-(iso-プロポキシ)プロパン、3) 1,3,3-トリエトキシ-1-(n-プロポキシ)プロパン、4) 1,3,3-トリエトキシ-1-(iso-プロポキシ)プロパンに関しては、上記の文献及

びケミカルアブストラクト (Chemical Abstract) には記載されておらず、また、本発明者等の知るかぎりでは、その他の文献にも記載されていないので、これらの化合物は新規な化合物であると考えられる。

また、特許文献 1 及び非特許文献 1 には、1, 1, 3, 3-テトラメトキシプロパン、1, 1, 3, 3-テトラエトキシプロパン等の製造方法が記載されている。これらの文献によれば、オルソギ酸エステル約 3 モルとエステルに対応するビニルエーテル 1 モルとから目的物である 1, 1, 3, 3-テトラメトキシ (又はエトキシ) プロパンなどが合成されている。

前述の対称な 1, 1, 3, 3-テトラメトキシプロパン及び 1, 1, 3, 3-テトラエトキシプロパンは、医薬品中間体であるピラゾールやピリミジン等の原料などとして知られている (非特許文献 1 参照)。

しかし、例えば 1, 1, 3, 3-テトラメトキシプロパンを合成するためには、オルソギ酸メチルと対応するビニルエーテルとしてメチルビニルエーテルを用いる必要があり、メチルビニルエーテルはガス状態であるので、実験室での合成は可能であるが、工業的に大量のメチルビニルエーテルなどを使用することは困難であった。

また、1, 1, 3, 3-テトラエトキシプロパンの合成にはオルソギ酸エチルと対応するエチルビニルエーテルを用いるが、エチルビニルエーテルは沸点が 36~37℃ の特殊引火物であり、大量に使用することはメチルビニルエーテルと同様に困難であった。

[特許文献 1]

特開昭 57-158735 号公報 (1982)

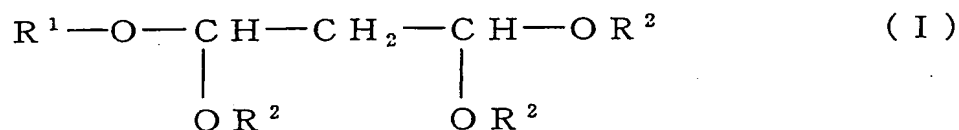
[非特許文献 1]

薬学雑誌 82、第 269~273 頁 (1962)

## 発明の開示

本発明者等は、例えば医農薬中間体であるピラゾールやピリミジンの原料などとして有用な高選択性及び高反応性の1, 1, 3, 3-テトラアルコキシプロパン、特に1, 1, 3, 3-テトラメトキシプロパンの従来の合成原料であるメチルビニルエーテルより沸点が高く、取り扱いやすい化合物を見出すことを目的に鋭意研究を行っていた。その結果、上記のような広範な利用が可能であり、且つ、沸点が55℃と高く工業的にも利用可能な化合物として骨格形成剤等の優れた性質を有する新規な非対称1, 3, 3-トリアルコキシ-1-プロポキシプロパンが工業的に製造できることを見出し、本発明を完成した。

即ち、本発明に従えば式(I)：



(式中、 $\text{R}^1$ はn-又はiso- $\text{C}_3\text{H}_7$ を示し、 $\text{R}^2$ は $\text{CH}_3$ 、 $\text{C}_2\text{H}_5$ を示す)

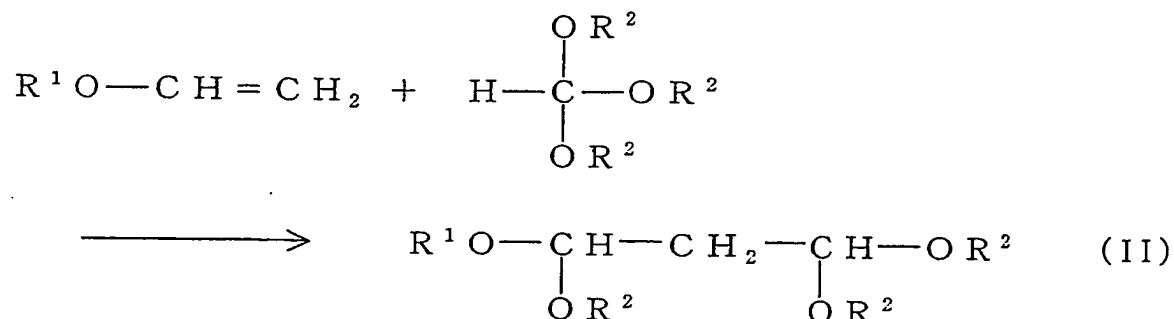
で表される非対称1, 3, 3-トリアルコキシ-1-プロポキシプロパンが提供される。

## 発明を実施する形態

以下本発明の実施の形態について詳しく説明する。

新規化合物である本発明の非対称1, 3, 3-トリアルコキシ-1-プロポキシプロパンは前記式(I)で表される化合物である。

本発明の非対称1, 3, 3-トリアルコキシ-1-プロポキシプロパンは、例えば次のような反応式(II)に従って製造することができる。



(式中、 $\text{R}^1$ は $\text{C}_3\text{H}_7$ を示し、 $\text{R}^2$ は $\text{CH}_3$ 、 $\text{C}_2\text{H}_5$ を示す。)

本発明化合物の具体的な合成法としては、例えば次のような方法を挙げることができる。

即ち、例えば、ガラス製のフラスコ中に、ビニルエーテルを装入して加熱した後、反応触媒として、例えば無水塩化鉄(III)、三フッ化ホウ素、フッ化水素及び塩化第二水銀等のルイス酸化合物を、ビニルエーテル100重量部に対して、好ましくは約0.5～2.0重量部添加し、攪拌しながら、例えばオルソギ酸のオルソエステルをビニルエーテル1モルに対して、約1.0～1.3モル添加し、例えば約0℃～40℃の温度で熟成反応させる。

反応終了後、反応混合物を減圧蒸留することにより、本発明に係る化合物である非対称1, 3, 3-トリアルコキシ-1-プロポキシプロパンを留出させることができる。

### 実施例

以下に実施例をあげて本発明を更に詳しく説明するが、本発明をこれらの実施例に限定するものでないことはいうまでもない。

#### 実施例 1

温度計及び攪拌装置を備えた300 mlの四つ口フラスコにオルソギ酸トリメチル106.1 g (1.0モル)を仕込み、攪拌しながら無水塩化鉄(III) 0.3 g (0.002モル)を加え、20～32℃の温度を保ちなが

ら、*n*-プロピルビニルエーテル81.8 g (0.95モル) を5時間かけて添加し、40℃に昇温し、2時間熟成させた。その後、得られた反応液を減圧蒸留して、純度44%の1, 3, 3-トリメトキシ-1-(*n*-プロポキシ)プロパン128.5 g (収率31.1%)を得た。この留分は小型高速回転バンド式精密蒸留装置にてさらに精製して、ガスクロマトグラフィーの面積百分率で100%の上記化合物4.5 gを得た(84℃、 $5.3 \times 10^{-4}$  MPa)。

#### $^1\text{H}$ -NMR分析 (CDCl<sub>3</sub>, TMS, 200MHz)

$\delta$  (ppm); 0.94(t,  $J=14.9$  Hz, 3H,  $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ )、1.62(m, 2H,  $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ )、1.91(m, 2H,  $\text{>CH-CH}_2\text{-CH<}$ )、3.34(s, 9H,  $\text{CH}_3\text{-O-}$ )、3.42(m, 2H,  $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ )、4.52(m, 2H,  $\text{>CH-CH}_2\text{-CH<}$ )

#### $^{13}\text{C}$ -NMR分析 (CDCl<sub>3</sub>, TMS, 200MHz)

$\delta$  (ppm); 10.6( $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ )、23.0( $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ )、36.6( $\text{>CH-CH}_2\text{-CH<}$ )、52.7( $\text{CH}_3\text{-O-}$ )、52.8(2C,  $\text{CH}_3\text{-O-}$ )、67.9( $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ )、101.0( $\text{CH}_3\text{-O-CH(CH}_3\text{)-CH}_2\text{-CH<}$ )、101.8( $\text{CH}_3\text{-O-CH(OC H}_3\text{)-CH}_2\text{-CH<}$ )

#### IR分析

<u>特性吸収体 / <math>\text{cm}^{-1}</math></u>	<u>帰 属</u>	<u>強 度</u>
2939	C-H (逆対称伸縮)	vs
1116	C-O (伸縮振動)	vs
1386	C-H (面内変角振動)	m
905	指紋領域	w

#### 実施例 2

温度計及び攪拌装置を備えた300 mlの四つ口フラスコにオルソギ酸トリメチル106.1 g (1.0モル) を仕込み、攪拌しながら無水塩化鉄(III) 0.3 g (0.002モル) を加え、20~32℃の温度を保ちなが

ら、iso-プロピルビニルエーテル81.8 g (0.95モル) を5時間かけて添加し、40℃に昇温し、2時間熟成させた。その後、反応液を減圧蒸留して、純度80%の1, 3, 3-トリメトキシ-1-(iso-プロポキシ)プロパン82.1 g (収率36.0%)を得た。さらに、この留分を小型高速回転バンド式精密蒸留装置にて精製して、ガスクロマトグラフィーの面積百分率で100%の上記化合物5.4 gを得た (86℃、 $8.0 \times 10^{-4}$  MPa)。

#### $^1\text{H}$ -NMR分析 (CDCl<sub>3</sub>, TMS, 200MHz)

$\delta$  (ppm); 1.15 1.22(d,  $J=6.0$  Hz, 6H,  $\text{CH}_3\text{-CH}(\text{CH}_3)\text{-O-}$ )、1.19(m, 1H,  $\text{>CH-CH}_2\text{-CH<}$ )、3.31(s, 3H,  $\text{CH}_3\text{-O-}$ )、3.33(s, 3H,  $\text{CH}_3\text{-O-}$ )、3.34(m, 3H,  $\text{CH}_3\text{-O-}$ )、3.86(m, 1H,  $\text{CH}_3\text{-CH-CH}(\text{CH}_3)\text{-O-}$ )、4.62(t,  $J=11.7$ , 1H,  $\text{CH}_3\text{-O-CH}(\text{OCH}_3)\text{-CH}_2\text{-CH<}$ )、4.49(t,  $J=12.1$ , 1H,  $\text{CH}_3\text{-O-CH}(\text{OCH}_3)\text{-CH}_2\text{-CH<}$ )、

#### $^{13}\text{C}$ -NMR分析 (CDCl<sub>3</sub>, TMS, 200MHz)

$\delta$  (ppm); 22.1 ( $\text{CH}_3\text{-CH}(\text{CH}_3)\text{-O-}$ )、37.0( $\text{>CH-CH}_2\text{-CH<}$ )、51.6, 52.7, 53.0( $\text{CH}_3\text{-O-}$ )、69.1( $\text{CH}_3\text{-CH}(\text{CH}_3)\text{-O-}$ )、99.2( $\text{CH}_2\text{-O-CH}(\text{OCH}_3)\text{-CH}_2\text{-CH<}$ )、101.9( $\text{CH}_3\text{-O-CH}(\text{OCH}_3)\text{-CH}_2\text{-CH<}$ )、101.0( $\text{CH}_3\text{-O-CH}(\text{OCH}_3)\text{-CH}_2\text{-CH<}$ )、101.8( $\text{CH}_3\text{-O-CH}(\text{OCH}_3)\text{-CH}_2\text{-CH<}$ )、

#### IR分析

特性吸収体 / $\text{cm}^{-1}$	帰 属	強 度
2974	C-H (逆対称伸縮)	vs
1113	C-O (伸縮振動)	vs
1383	C-H (面内変角振動)	m
905	指紋領域	w

#### 実施例 3

温度計及び攪拌槽値を備えた300 mlの四つ口フラスコにオルソギ酸トリエチル148.1 g (1.0モル) を仕込み、攪拌しながら無水塩化



鉄 (III) 0.3 g (0.002モル) を加え、温度 0 °C を保ちながら、*n*-プロピルビニルエーテル 81.5 g (0.95モル) を 5 時間かけて添加し、そのまま 1 時間熟成させた。その後、反応液を減圧蒸留して、純度 39% の 1, 3, 3-トリエトキシ-1-(*n*-プロポキシ)プロパン 165.2 g (収率 28%) を得た。さらに、この留分を小型高速回転バンド式精密蒸留装置にて精製し、ガスクロマトグラフィーの面積百分率で 100% の上記化合物 1.0 g を得た (114°C、 $6.7 \times 10^{-4}$  MPa)。

#### $^1\text{H}$ -NMR分析 (CDCl<sub>3</sub>, TMS, 200MHz)

$\delta$  (ppm); 0.93(t,  $J=14.9$  Hz, 3H,  $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 1.20(t,  $J=14.3$  Hz, 9H,  $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 1.61(m, 2H,  $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 1.96(m, 2H,  $\text{>CH-CH}_2\text{-CH<}$ ), 3.54(m, 6H,  $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 3.66(m, 2H,  $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 4.62(m, 2H,  $\text{>CH-CH}_2\text{-CH}_2\text{-CH<}$ ),

#### $^{13}\text{C}$ -NMR分析 (CDCl<sub>3</sub>, TMS, 200MHz)

$\delta$  (ppm); 10.7( $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 15.4( $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 23.2( $\text{H}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 38.2( $\text{>CH-CH}_2\text{-CH<}$ ), 61.3( $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 67.6( $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{-O-}$ ), 100.3( $\text{>CH-CH}_2\text{-CH<}$ )

#### IR分析

特性吸収体 / $\text{cm}^{-1}$	帰 属	強 度
2976	C-H (逆対称伸縮)	vs
1116	C-O (伸縮振動)	vs
1376	C-H (面内変角振動)	m
590	指紋領域	w

#### 実施例 4

温度計及び攪拌装置を備えた 300 ml の四つ口フラスコにオルソギ酸トリエチル 148.1 g (1.0モル) を仕込み、攪拌しながら無水塩化鉄 (III) 0.3 g (0.002モル) を加え、温度 -30°C を保ちながら、i

iso-プロピルビニルエーテル81.5 g (0.95モル) を5時間かけて添加し、そのまま1時間熟成させた。その後、反応液を減圧蒸留して、純度73%の1, 3, 3-トリエトキシ-1-(iso-プロポキシ)プロパン133.2 g (収率42%)を得た。さらに、この留分を小型高速回転バンド式精密蒸留装置にて精製したが、純粋なものは得られなかった(111°C、 $6.7 \times 10^{-4}$  MPa)。

$^1\text{H}$ -NMR分析 (CDCl<sub>3</sub>, TMS, 200MHz)

$\delta$  (ppm); 1.16, 1022(m, 9H, CH<sub>3</sub>-CH<sub>2</sub>-O-,  
1.20(m, 6H, CH<sub>3</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)-O-), 1.93(m, 1H, >CH-CH<sub>2</sub>-CH<), 3.51(m, 2H, CH<sub>3</sub>-CH<sub>2</sub>-O-), 3.58(m, 4H, CH<sub>3</sub>-CH<sub>2</sub>-O-), 3.87(m, 1H, CH<sub>3</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)-O-), 4.64(t, J=11.7Hz, 2H, >CH-CH<sub>2</sub>-CH<)

$^{13}\text{C}$ -NMR分析 (CDCl<sub>3</sub>, TMS, 200MHz)

$\delta$  (ppm); 15.4(CH<sub>3</sub>-CH<sub>2</sub>-O-), 22.3, 23.3(CH<sub>3</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)-O-), 38.9(CH<sub>3</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)-O-), 60.2, 61.2, 61.5, (CH<sub>3</sub>-CH<sub>2</sub>-O-), 68.7(CH<sub>3</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)-O-), 98.8(CH<sub>3</sub>-CH<sub>2</sub>-O-CH(OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)-CH<sub>2</sub>-CH<), 100.4(CH<sub>3</sub>-CH<sub>2</sub>-O-CH(OCH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)-CH<sub>2</sub>-CH<)

IR分析

特性吸収体 / cm <sup>-1</sup>	帰 属	強 度
2976	C-H (逆対称伸縮)	vs
1116	C-O (伸縮振動)	vs
1376	C-H (面内変角振動)	m
590	指紋領域	w

実施例 5

温度計及び攪拌装置を備えた300 mlの四つ口フラスコにオルソギ酸トリエチル148.1 g (1.0モル) を仕込み、攪拌しながら無水塩化鉄(III) 0.3 g (0.002モル) を加え、温度0°Cを保ちながらiso-プロピルビニルエーテル81.5 g (0.95モル) を5時間かけて添加し

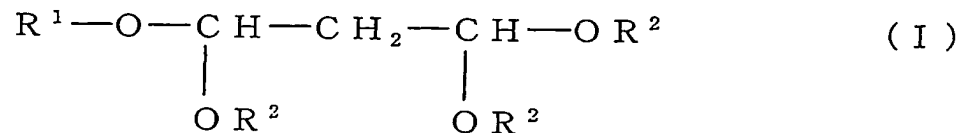
、そのまま1時間熟成させた。その後、反応液を減圧蒸留して、純度47%の1, 3, 3-トリエトキシ-1-(iso-プロポキシ)プロパン135.1 g (収率27%)を得た。さらに、この留分を小型高速回転バンド式精密蒸留装置にて精製して、ガスクロマトグラフィーの面積百分率で100%の上記化合物0.9 g が得られた(111°C、 $6.7 \times 10^{-4}$  MPa)。得られた化合物の分析値は実施例4のものと同様であった。

#### 発明の効果

本発明に係る非対称1, 3, 3-トリアルコキシ-1-プロポキシプロパンは、医農薬中間体であるピラゾールやピリミジンの原料などに用いられる高選択性および高反応性の骨格形成剤として有用である。

## 請 求 の 範 囲

1. 式 (I) :



(式中、 $R^1$ はn-又はiso- $C_3H_7$ を示し、 $R^2$ は $CH_3$ 、 $C_2H_5$ を示す)

で表される非対称1, 3, 3-トリアルコキシ-1-プロポキシプロパン。

2. 式 (I)において $R^2$ が $CH_3$ である請求項1に記載の1, 3, 3-トリメトキシ-1-(n-又は iso-プロポキシ)プロパン。

3. 式 (I)において $R^2$ が $C_2H_5$ である請求項1に記載の1, 3, 3-トリエトキシ-1-(n-又は iso-プロポキシ)プロパン。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/01559

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> Int.Cl <sup>7</sup> C07C43/303		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>7</sup> C07C43/00		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) REGISTRY (STN), CA (STN)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	KOBAYASHI, Eiji, Several reactions with alkyl vinyl ethers and their derivatives. I. Syntheses of 1,1,3,3-tetraalkoxy-propane, Yakugaku Zasshi, 1962, Vol.82, pages 269 to 273	1-3
X	BREDERECK, Hellmut et al., Formamide reactions. VIII. A new pyrimidine synthesis, Chem. Ber., 1957, Vol.90, pages 942 to 952	1-3
X	US 4410733 A (BASF AG), 18 October, 1983 (18.10.83), & JP 57-158735 A & EP 58928 A1	1-3
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family	
Date of the actual completion of the international search 28 May, 2003 (28.05.03)	Date of mailing of the international search report 17 June, 2003 (17.06.03)	
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer	
Facsimile No.	Telephone No.	

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl <sup>7</sup> C07C43/303		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl <sup>7</sup> C07C43/00		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
REGISTRY (STN), CA (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	KOBAYASHI, Eiji, Several reactions with alkyl vinyl ethers and their derivatives. I. Syntheses of 1,1,3,3-tetraalkoxypropane, Yakugaku Zasshi, 1962, Vol. 82, p. 269-273	1-3
X	BREDERECK, Hellmut et al., Formamide reactions. VIII. A new pyrimidine synthesis, Chem. Ber., 1957, Vol. 90, p. 942-952	1-3
X	US 4410733 A (BASF Aktiengesellschaft) 1983. 10. 18 & JP 57-158735 A & EP 58928 A1	1-3
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	28. 05. 03	国際調査報告の発送日 17.05.03
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 前田 憲彦 印	4H 8318
		電話番号 03-3581-1101 内線 3443